# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDER
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.



### (19) BUNDESREPUBLIK **DEUTSCHLAND**

**DEUTSCHES PATENT- UND MARKENAMT** 

# <sup>®</sup> Off nl gungsschrift

<sub>®</sub> DE 197 27 841 A 1

Aktenzeichen:

197 27 841.8

② Anmeldetag:

24. 6.97

43 Offenlegungstag:

7. 1.99

(f) Int. Cl.6: C 01 B 3/02 C 01 B 3/26

C 01 B 3/38 // H01M 8/06

#### (7) Anmelder:

Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der angewandten Forschung eV, 80636 München, DE

PFENNING MEINIG & PARTNER, 10707 Berlin

#### (72) Erfinder:

Maier-Röltgen, Uli, Dipl.-Ing., 79379 Müllheim, DE; Schuler, Alexander, Dr.-Ing., 79098 Freiburg, DE; Finkbeiner, Hartmut, Dipl.-Ing., 72270 Baiersbronn,

#### 66 Entgegenhaltungen:

DE 39 12 003 A 192380 ΑT US 47 89 540 EP 03 03 438 A2

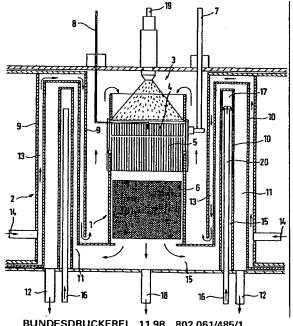
JP 62-56304 A. In Patents Abstracts of Japan Vol.11 (1987) No.251 (C-440); JP 2-129001 A. In Patents Abstracts of Japan Vol.14 (1990), No.350 (C-744); JP 59-73403 A. In Patents Abstracts of Japan Vol.8 (1984) No.178 (C-238); JP 63-129002 A. In Patents Abstracts of Japan Vol.12 (1988) No.382 (C-535); JP 1-157402 A. In Patents Abstracts of Japan Vol.13 (1989) No.419 (C-637);

#### Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

### Verfahren und Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen

Es wird ein Verfahren und eine Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen vorgeschlagen, bei denen der Brennstoff über eine Zuführungseinrichtung einem Reformierreaktor zugeführt wird. Das entstehende Reformat wird in einem Wärmetauscher im Gegenstrom und in wärmetauschender Weise zu von außen nach innen geführten Ausgangsstoffen der Reformierung geleitet. Der über die Zuführungseinrichtung zugeführte Brennstoff wird mit dem Ausgangsstoff direkt auf die einen Katalysator aufweisenden Reaktionszone aufgebracht, in der die Verbrennung und Reformierung bzw. Katalyse gleichzeitig und im gleichen Bereich durchgeführt wird.



BUNDESDRUCKEREI 11.98 802 061/485/1

#### Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung und ein Verfahren zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen, die beispielsweise in Form von Erdgas, Benzin, Methanol, Diesel, Flüssiggas usw. vorhanden sind.

Die industrielle Wasserstofferzeugung aus fossilen Energieträgern wie Erdgas, Flüssiggas oder Naphta wird hauptsächlich nach dem Steam-Reforming-Verfahren in mit Katalysator befüllten Röhrenöfen mit indirekter Beheizung 10 durchgeführt. Die wasserstoffreichen Synthesegase dienen beispielsweise der Herstellung von Ammoniak, Alkoholen oder zur Methanolsynthese, aber auch zur Gewinnung von Reinstwasserstoff. Bedingt durch die Größe der Anlagen sind aufwendige Verfahrensschritte in getrennten Reaktor- 15 konstruktionen möglich.

Neben den großindustriellen Wasserstofferzeugungsanlagen sind im Zuge der Brennstoffzellenforschung spezielle Reformer entwickelt worden, die auf dem sogenannten heatexchange-Prinzip basieren. Die Produktionsleistung an 20 Wasserstoff liegt bei diesen Reformern in der Größenordnung einiger 100 kW bezogen auf den unteren Heizwert des Wasserstoffvolumenstroms. Als Wasserstoffnutzer werden die Hochtemperaturbrennstoffzellen SOFC oder MCFC und die bereits kommerziell vertriebene Phosphorsäure Brenn- 25 stoffzelle zur dezentralen Stromerzeugung eingesetzt.

Für kleinere Systeme mit Polymermembranbrennstoffzellen wird im Hinblick auf die mobile Anwendung meist Methanol als Energieträger gewählt, wobei die autotherme Reformierung von Methanol schon bei Temperaturen von 30 200°C bis 300°C abläuft und gegenüber der Reformierung von z. B. Methan eine geringere Reaktionsenthalpie erfordert

Die obengenannten heat-exchange-Reformer zeichnen sich durch Gegenstrom- und Gleichstromführung der Stoffströme Rauchgas und Prozeßgas aus. Die Reformierreaktion findet in mit Feststoffkatalysator, zum Beispiel Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gefüllten Rohr- oder Ringspaltreaktoren statt. Der Flammenbrenner liegt meist zentrisch in der Reformiereinheit oder ist an den Reformer angeflanscht. Die Rauchgase werden dann 40 in Spalten an den Reaktorwänden vorbeigeführt, wo der für die Reaktion benötigte Wärmestrom konvektiv übertragen wird. Voraussetzung für gute Umsätze sind ausreichend große Übertragerflächen. Das Prozeßgas nach der Reformierung wird ebenfalls im Gegen- oder Gleichstrom zum ein- 45 tretenden Eduktgas geführt, um den hohen Enthalpiestrom des Synthesegases wenigstens teilweise zur Aufwärmung der Edukte zu nutzen und damit Feuerungsleistung zu sparen. Die Nachteile der bestehenden Reformer sind darin zu sehen, daß sie nicht durch einfaches Scale down auf kleine 50 Systeme angepaßt werden können und insbesondere das thermische Management gestaltet sich in kleinen Reaktoren schwierig.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Vorrichtung und ein Verfahren zur autothermen Reformierung von SKohlenwasserstoffen insbesondere im kleinen Leistungsbereich zu schaffen, mit denen Wärmeverluste minimiert werden können, wobei ein gutes dynamisches Verhalten geliefert werden soll und insbesondere für die mobile Anwendung die Vorrichtung klein und kompakt ausgebildet sein 60 soll.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch die Merkmale des Hauptanspruchs und des nebengeordneten Anspruchs gelöst. Dadurch, daß der Brennstoff, gemischt mit Ausgangsstoffen der Reformierung direkt auf den Katalysator des Reformierreaktors aufgebracht wird und die Verbrennung und Reformierung im wesentlichen in dem gleichen Reaktionsbereich stattfindet, wobei mindestens ein

2

Teil der Ausgangsstoffe in einem Wärmetauscher im Wärmetausch mit dem aus dem Reformierreaktor austretenden Reformat vorgeheizt werden, kann eine wärmeproduzierende und wärmeverbrauchende Reaktion an einer Stelle durchgeführt werden, wodurch ein sehr gutes dynamisches Verhalten vorhanden ist, da keine Hemmung durch Wärmeübertragung gegeben ist. Zum Starten der Vorrichtung wird eine kurze Startzeit durch geringe aufzuheizende Masse ermöglicht, die Temperatur des Katalysators ist durch Zugabe der beispielsweise als Luft ausgebildeten Ausgangsstoffe frei einstellbar und die Wasserstoffausbeute ist durch Zugabe von Wasser oder Wasserdampf steuerbar. Insgesamt wird eine hohe Leistungsdichte pro Systemvolumen erreicht. Darüber hinaus wird eine einfache und kompakte integrative Bauweise zur Verfügung gestellt, da ein separater Verdampfer oder eine Verdampferstufe für flüssige Brennstoffe wegfällt, und keine externe Beheizung, das heißt ein Brenner notwendig ist.

Weiterhin ist eine Umsetzung von verschiedenen Kohlenwasserstoffen in einem Gerät möglich und es kann der Betrieb sowohl unter Druck als auch drucklos durchgeführt werden. Die Kohlenwasserstoffmenge kann in weiten Bereichen (1:5 und mehr) moduliert werden und es sind sehr kleine Leistungen möglich.

Durch die in den Unteransprüchen angegebenen Maßnahmen sind vorteilhafte Weiterbildungen und Verbesserungen möglich.

Es wird eine autotherme Reformierung in einem Wabenkatalysator und/oder in einer Katalysatorschüttung durchgeführt, wobei die Reaktion bei niedrigen Temperaturen ermöglicht wird und Materialprobleme vermieden werden. Eine vorherige Verdampfung des flüssigen Kohlenwasserstoffs ist nicht notwendig. Durch Vorsehen des Wärmetauschers um die Reaktionszone können die als Ausgangsstoffe verwendete Luft und/oder der Sauerstoff und/oder das Wasser und/oder der Wasserdampf vorgeheizt werden und es werden Wärmeverluste nach außen vermieden. Im Betrieb wird durch Vermischung des Flüssigkeitsnebels mit der vorgewärmten Luft/Sauerstoff/Wasser/Wasserdampf-Mischung und durch Wärmerückstrahlung des Katalysators ein Teil der Flüssigkeit verdampft. Es ist eine Zugabe von Luft und/ oder Sauerstoff und/oder Wasserstoff und/oder über die Zufuhrdüse, die als Zweistoffdüse ausgebildet sein kann, und den Wärmetauscher möglich. Die Regelung der Prozeßbedingungen kann durch Einstellung der Verhältnisse der Zugabe leicht vorgenommen werden. Weiterhin kann das Wasser bzw. der Wasserdampf auch gemeinsam mit dem Kohlenwasserstoff über die Düse zugegeben werden, wodurch Rußbildung und Ablagerungen unterdrückt werden.

Durch Eindüsung in die Reaktionszone wird der Kohlenwasserstoffextrem schnell auf Prozeßtemperatur gebracht und die Reaktion kann sofort und sehr schnell in die gewollte Richtung verlaufen. Dadurch werden unerwünschte Nebenreaktionen wie z. B. Cracken, die durch langsames Aufheizen des Kohlenwasserstoffs stattfinden können und zu Ablagerungen führen, vermieden.

Ausführungsbeispiele der Erfindung sind in der Zeichnung dargestellt und werden in der nachfolgenden Beschreibung näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 einen Schnitt durch ein erstes Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen Vorrichtung,

Fig. 2 einen Schnitt durch ein zweites Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen Vorrichtung,

Fig. 3 einen Schnitt durch ein drittes Ausführungsbeispiel 65 der erfindungsgemäßen Vorrichtung, und

Fig. 4 einen Schnitt durch ein viertes Ausführungsbeispiel der Erfindung.

In Fig. 1 ist eine Vorrichtung zur autothermen Reformie-

4

rung dargestellt, die flüssige und gasförmige Kohlenwasserstoffe katalytisch in Synthesegase umsetzt. Die Vorrichtung besteht aus einem Reformierreaktor 1, einem Wärmetauscher 2 und einem Eindüsungs-Mischungsraum 3, die in einer Konstruktion bzw. in einer Einheit realisiert sind. Der Reformierreaktor 1 besteht aus zwei Bereichen, einem oberen Bereich und einem unteren Bereich, wobei der obere Bereich Wabenkörper 4, 5 und der untere Bereich eine Schüttung 6 aufweist. Es sind ein erster Wabenkörper 4 und ein davon getrennter zweiter Wabenkörper 5 vorgesehen, wobei 10 die Wabenkörper aus Metall oder Keramik bestehen können, die als Träger für einen Katalysator dienen. Die Wabenkörper sind daher mit einem Katalysator beschichtet, der aus Platin besteht oder Nickel aufweist, wobei jedoch jegliche Katalysatorbeschichtung verwendet werden kann, sofern 15 diese für die Reformierung geeignet ist. Gleiches gilt für den Katalysatorträger. Die Schüttung ist im vorliegenden Ausführungsbeispiel als keramische Schüttung ausgebildet, die ebenfalls mit Katalysator entsprechend den obigen Angaben beschichtet ist.

Anstelle der Schüttung kann auch ein Wabenkörper bzw. ein entsprechender mit Katalysatormaterial versehener permeabler Festkörper verwendet werden, bei dem der Druckverlust geringer ist.

Zum Starten ist der erste Katalysator 4 elektrisch beheizt, 25 was durch die elektrische Leitung 7 angedeutet ist. Anstelle der elektrischen Heizung kann im Mischraum 3 eine Zündvorrichtung vorgesehen sein.

Weiterhin ist im Bereich des ersten Wabenkörpers 4 ein Temperatursensor mit Anschlußleitung 8 vorgesehen, die 30 zur Überwachung der Temperatur dienen.

Der Wärmetauscher 2 besteht aus mehreren zylindrischen Wänden 9 bzw. zylindrischen ringförmigen Hohlkörpern 10, die so angeordnet und ineinander verschachtelt sind, daß sie mindestens zwei getrennte Strömungswege mit mehrfachen 35 Umleitungen bilden. Ein Strömungsweg 11 für das Reformat schließt sich an das untere Ende des Reformierreaktors 1, an dem das Reformat austritt, an, wird nach oben und anschließend nach unten umgelenkt und mündet in einen Auslaß 12. Ein weiterer Strömungsweg 13 nach Fig. 1 steht mit 40 einem Eintrittsanschluß 14 für Luft, Sauerstoff, Wasser und/ oder Wasserdampf in Verbindung, wird im oberen Bereich der Vorrichtung nach unten umgelenkt und mündet in den freien Raum zwischen Wärmetauscher 2 und Reformierreaktor 1, in dessen oberem Bereich sich der Mischraum 3 befindet. Weiterhin wird ein abgeschlossener Strömungsweg 15 gebildet, der mit einem Einlaß 16 gleichfalls für Luft, Sauerstoff, Wasser oder Wasserdampf verbunden ist, und daran anschließend von einem hohlen Ringrohr 17 begrenzt ist, am Austritt des Ringrohrs 17 nach unten umgelenkt wird 50 und am Auslaß 18 aus dem Wärmetauscher herausführt. Im Ausführungsbeispiel ist der bzw. sind die Einlässe 16 mit jeweils einem in das Ringrohr 17 hineinragende Hohlrohr 20 verbunden, von denen über den Umfang mehrere vorgesehen sein können. Der Strömungsweg 15 dient zur Vorerwär- 55 mung des Ausgangsstoffes und sein Auslaß 18 kann mit dem Einlaß 14 oder auch mit einer Zufuhreinrichtung im oberen Bereich der Vorrichtung verbunden sein.

Im oberen Bereich der Vorrichtung ist eine als Düse 19 ausgebildete Zufuhrvorrichtung für Brennstoff vorgesehen, 60 die in den Mischraum 3 mündet, wobei die Düse 19 als Einoder Zweistoffdüse ausgebildet ist. Zusammen mit dem Brennstoff kann sowohl die Luft, Sauerstoff, Wasserdampf als auch das Wasser miteingebracht werden, wobei der entsprechende Ausgangsstoff kalt oder über den Wärmetau- 65 scher vorgewärmt ist.

Wesentlich ist, daß der Wärmetauscher 2, wie das Ausführungsbeispiel zeigt, um den Reaktionsraum herum ange-

ordnet ist, wobei er aus konzentrischen Rohren besteht und in den dadurch entstehenden Ringspalten die Ausgangsstoffe der Wärme, d. h. die zugeführte Luft, der Sauerstoff, der Wasserdampf und eventuell das zugeführte Wasser im Gegenstrom zum Reformat im Wärmetausch mit diesem von außen nach innen geführt werden. Dadurch werden die Wärmeverluste nach außen minimiert und aufwendige, der kompakten Bauweise abträgliche Isolationsmaßnahmen vermieden. Der Aufbau des Reformierreaktors 1 und des Wärmetauschers 2 muß, wie in der Ausgestaltung gezeigt, Wärmedehnungen ohne unzulässige Verspannungen zulassen, um die Dichtheit und Materialbeständigkeit des Reformers zu gewährleisten. Dies wird dadurch erreicht, daß im heißen Mittelbereich die Ringrohre hängend angeordnet sind und die Teile des Wärmetauschers nur außen im kalten Bereich zum Beispiel verschraubt sind.

Zu Beginn des Betriebes der Vorrichtung wird der erste Wabenkörper 4 vorgeheizt und der Brennstoff in flüssiger oder gasförmiger Form über die Düse 19 zusammen mit dem Ausgangsstoff, der vorgewärmt sein kann, d. h. Luft und/oder Sauerstoff gegebenenfalls Wasserdampf in den Mischraum 3 eingeführt und auf den Wabenkörper 4 aufgedüst. Dadurch wird die Verbrennung des Brennstoffs gestartet. Nach Erreichen der nötigen Reformierungstemperatur wird durch Ändern der Luftzufuhr bzw. Sauerstoffzufuhr und Zugabe von Wasser oder Wasserdampf in den Reformierungsbetrieb übergegangen. Die Verdüsung mit Wasserdampf bewirkt eine besseren Brennstoffumsatz und unterdrückt stärker eine eventuelle Rußbildung. In dem Reformierreaktor wird die katalytisch unterstützte Verbrennung und die Reformierung selbst gleichzeitig katalytisch durchgeführt.

Über den Sensor 8 kann die Temperatur überwacht werden, wobei abhängig von dem Meßwert die Temperatur angepaßt werden kann. Während des Betriebes können die Temperatur, der Stoffdurchsatz und die Temperaturverteilung im Katalysator gezielt beeinflußt werden. Die freien Parameter sind der Luftdurchsatz (Sauerstoffdurchsatz), der Brennstoffdurchsatz und der Wasserdurchsatz, sowie die Zugabe der Luft und des Wassers direkt ohne Vorwärmung in die Reaktionszone oder indirekt ganz oder teilweise über den Wärmetauscher in die Reaktionszone. Dadurch ist eine hohe Modulierbarkeit mit annähernd gleichbleibender Produktgaszusammensetzung möglich. Besonders in Verbindung mit Brennstoffzellen, die ein exzellentes Teillastverhalten besitzen und dort auch betrieben werden, stellt die Flexibilität des Reformers ein wichtiges Kriterium dar.

Das Reformat tritt, wie durch die Pfeile in Fig. 1 angedeutet, unten aus dem Schüttbett 6 aus, wird in dem Strömungsweg 11 nach oben gelenkt, im oberen Bereich wieder umgelenkt und tritt am Auslaß 12 aus der Vorrichtung aus. Gleichzeitig wird im Gegenstrom über den Einlaß 14 und den Strömungsweg 13 der Ausgangsstoff von außen nach innen in den Reaktorraum eingeleitet, wobei das Reformat seine Temperatur an die Ausgangsstoffe abgibt. Zusätzlich wird Luft, Sauerstoff, Wasserdampf oder Wasser über den Einlaß 16 in das Hohlrohr 20 eingeleitet, im oberen Bereich umgelenkt und am Auslaß 18 wieder herausgezogen, wobei die Stoffe gleichfalls durch die Wärme des Reformats aufgeheizt werden. Je nach Bedarf kann der Wärmetauscher 2 vollständig, d. h. vom Einlaß 16 über den Strömungsweg 15 zum Auslaß 18, wobei die Strömung auch umgekehrt erfolgen kann, d. h. der Einlaß ist bei 18 und der Auslaß bei 16 und dann vom Auslaß 16 bzw. 18 zum Einlaß 14 und weiter über den Strömungsweg 13, durchströmt werden. Er kann jedoch auch nur teilweise über den Einlaß 14 und den Strömungsweg 13 durchströmt werden oder bei 14 kann eine Mischung aus dem vorgewärmten Ausgangsstoff und fri5

schem Ausgangsstoff zugeführt werden.

In Fig. 2 ist ein weiteres Ausführungsbeispiel dargestellt, wobei hier ein oder mehrere Rohre 21 vorgesehen sind, die im oberen Bereich der Vorrichtung im heißen Teil des Wärmetauschers 2 im Strömungsweg 13 münden. Den Rohren 21 wird beim Einlaß 22 Wasser bzw. Wasserdampf zugegeben, das sich an der heißeren Stelle des Wärmetauschers 2 mit dem über den Einlaß 14 zugeführten Ausgangsstoff vermischt. Dies ermöglicht insbesondere beim Hochfahren des Systems eine frühere Zugabe von Wasser oder Wasserdampf ohne die Gefahr des Auskondensierens und Ansammelns von Wasser im System. Über eine Zuführung 23, die als Düse ausgebildet sein kann, besteht die Möglichkeit, das Reformat sofort nach der Reformierung herunter zu quenchen, d. h. durch Wassereindüsung schneller herunterzukühlen, was eine eventuelle Kohlenstoffabscheidung unterdrückt.

In Fig. 3 weist der Wärmetauscher 2 eine Verdampferwendel 24 auf, wobei über einen Zulaß 25 in einem Rohr 26 Wasser oder Wasserdampf in den oberen Bereich der Wendel geleitet wird, in der auf dem Weg nach unten eine vollständige Verdampfung stattfindet und bei dem Auslaß 28 kann der erhitzte Ausgangsstoff abgezogen werden, der wiederum vollständig oder teilweise dem Einlaß 14 oder vollständig oder teilweise der Binlaß 14 oder vollständig oder teilweise der Düse 19 zugeführt werden kann. 25 Dadurch wird ein höherer Wirkungsgrad erreicht und/oder durch mehr Wasser bzw. Wasserdampf wird eine eventuelle Rußbildung stärker unterdrückt. In der Verdampferwendel 24 kann auch Brennstoff vorbehandelt und entsprechend dem Prozeß zugeführt werden.

Das Ausführungsbeispiel nach Fig. 4 ist ähnlich zu dem nach Fig. 3, wobei dem Einlaß 25 der Verdampferwendel Brennstoff, Wasser bzw. Wasserdampf, Luft und/oder Sauerstoff zugegeben werden kann. Der Auslaß der Verdampferwendel 24 ist mit einer Rohrleitung 27 verbunden, die di- 35 rekt in dem Raum zwischen zweitem Wabenkörper 5 und Schüttung 6 mündet. Der oder die über den Zulaß 25 eingeführten Stoffe werden nach der Vorwärmung über die Verdampferwendel 24 zwischen den beiden Katalysatoren, bestehend aus beschichtetem Wabenkörper 5 und beschichte- 40 ter Schüttung 6 in den Reformierungsprozeß eingebracht. Dadurch kann der Reformierungsprozeß, d. h. das thermodynamische Gleichgewicht, sowie die Temperatur zusätzlich stark beeinflußt bzw. optimiert werden. Es kann auch eine der Rohrleitung 27 entsprechende Rohrleitung direkt, 45 ohne den Weg über die Verdampferwendel zu nehmen, in die Reaktionszone eingeführt werden.

Die Ein- und Auslässe können je nach Anwendungsfall gewechselt werden, so daß die Strömungswege ihre Richtung umkehren.

#### Patentansprüche

- 1. Vorrichtung zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen mit einer Zuführungseinrichtung 55 für den Brennstoff und einem Reformierreaktor (1), dem ein Wärmetauscher (2) zugeordnet ist, wobei der einen Katalysator aufweisende Reformierreaktor (1) vom Wärmetauscher (2) umgeben ist und wobei der über die Zuführungseinrichtung (19) eingeführte 60 Brennstoff gemischt mit Ausgangsstoffen der Reformierung direkt auf den Katalysator aufgebracht wird und Verbrennung und Reformierung im wesentlichen in der gleichen Reaktionszone stattfindet.
- 2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekenn- 65 zeichnet, daß der Reformierreaktor (1) unterhalb der Zuführungseinrichtung (19) angeordnet ist, und daß zwischen Zuführungseinrichtung (19) und Reformier-

6

- reaktor (1) ein Mischraum (3) vorgesehen ist, in dem der Brennstoff mit den Ausgangsstoffen gemischt wird.

  3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Reformierreaktor (1) mindestens zweistufig ist und mindestens einen mit Katalysatormaterial beschichteten permeablen Festkörper (4, 5) und einen sich daran anschließenden Katalysatormaterial aufweisenden Schüttbett (6) oder einen weiteren mit Katalysatormaterial versehenen permeablen Festkörper aufweist.
- 4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der permeable Festkörper ein metallischer und/oder keramischer Wabenkörper ist.
- 5. Vorrichtung nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, daß der permeable Festkörper zwei übereinanderliegende getrennte Teile (4, 5) aufweist, wobei der obere Teil elektrisch vorheizbar ist.
- 6. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) mehrere konzentrisch angeordnete Ringspalte aufweist, in denen mindestens ein Teil der Ausgangsstöffe der Reformierung im Gegenstrom mit dem aus dem Reformierreaktor (1) austretenden Reformat von außen nach innen geführt werden.
- 7. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsstoffe Luft und/oder Sauerstoff und/oder Wasserdampf und/oder Wasser sind.
- 8. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Zuführungseinrichtung eine Düse (19) aufweist, die den Brennstoff auf das Katalysatormaterial des permeablen Festkörpers (4, 5) aufdüst.
- Vorrichtung nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Düse als Zweistoffdüse ausgebildet ist, durch die zusätzlich zum Brennstoff Ausgangsstoff eingedüst wird.
- 10. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) eine Verdampferwendel (24) aufweist, die von den gesamten oder von einem Teil der Ausgangsstoffe und/oder von Brennstoff durchströmt ist.
- 11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Wärmetauscher (2) mit einer Leitung (27) verbunden ist, die einen Teil des Ausgangsstoffs in den Mittelbereich des Reformierreaktors (1) führt.
- 12. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß der Brennstoff gasförmig und/oder flüssig ist.
- 13. Verfahren zur autothermen Reformierung von Kohlenwasserstoffen, bei dem der Brennstoff einer Reformierzone zugeführt wird und das entstehende Reformat im Gegenstrom und in wärmetauschender Weise zu von außen nach innen zugeführten Ausgangsstoffen der Reformierung geleitet wird, wobei der zugeführte Brennstoff, gemischt mit dem Ausgangsstoff, direkt auf die einen Katalysator aufweisenden Reaktionszone aufgebracht wird, in der die Verbrennung und Reformierung gleichzeitig katalytisch durchgeführt wird.
- 14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß zum Starten der Reaktion der Katalysator elektrisch vorgeheizt wird und/oder der Brennstoff für eine kurzzeitige reine Verbrennung durch einen Zündfunken gezündet wird.
- 15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Brennstoff und/oder der Ausgangsstoff in gasförmigem und/oder flüssigem Zustand

## DE 197 27 841 A 1

	auf	den	Katal	ysator	aufgedüst	wir
--	-----	-----	-------	--------	-----------	-----

- 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens ein Teil der Ausgangsstoffe im Wärmeaustausch mit dem Reformat vorgeheizt und mit dem Brennstoff zugeführt werden.
- 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsstoffe Luft und/oder Sauerstoff und/oder Wasser und/oder Wasserdampf sind.
- 18. Verfahren nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß Wasser und/oder Wasserdampf an einer heißeren Stelle des Wärmetauschers mit dem Reformat zugeführt wird.
- 19. Verfahren nach einem der Ansprüche 13 bis 18, 15 dadurch gekennzeichnet, daß vorgewärmte oder nicht vorgewärmte Ausgangsstoffe und/oder Brennstoff direkt in den mittleren Bereich der Reaktionszone eingebracht werden.

Hierzu 4 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

Nummer: Int. Cl.<sup>6</sup>; Offenlegungstag: **DE 197 27 841 A1 C 01 B 3/02**7. Januar 1999

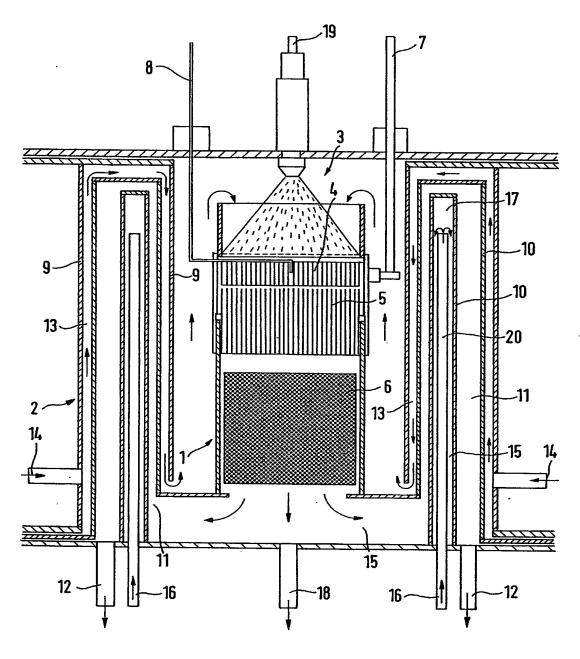
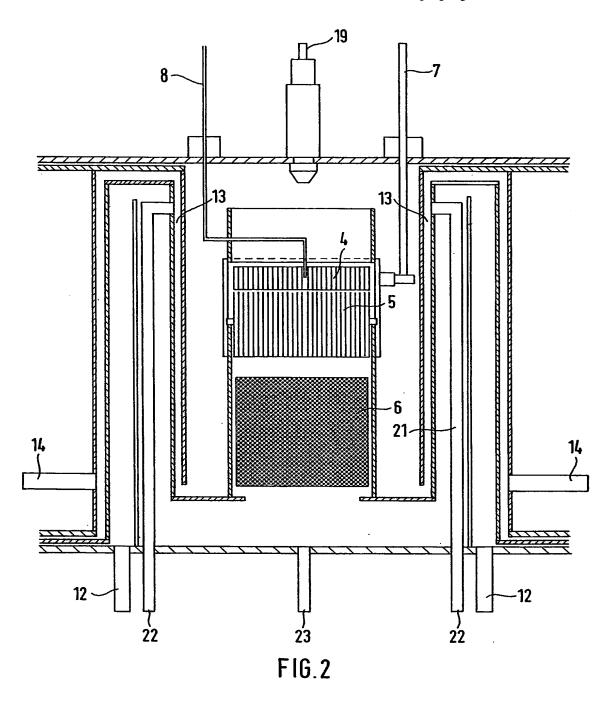


FIG. 1

Nummer: Int. Cl.<sup>6</sup>: Offenlegungstag:

DE 197 27 841 A1 C 01 B 3/02

7. Januar 1999



Nummer: Int. Cl.<sup>6</sup>;

Offenlegungstag: 7. J

DE 197 27 841 A1 C 01 B 3/02

7. Januar 1999

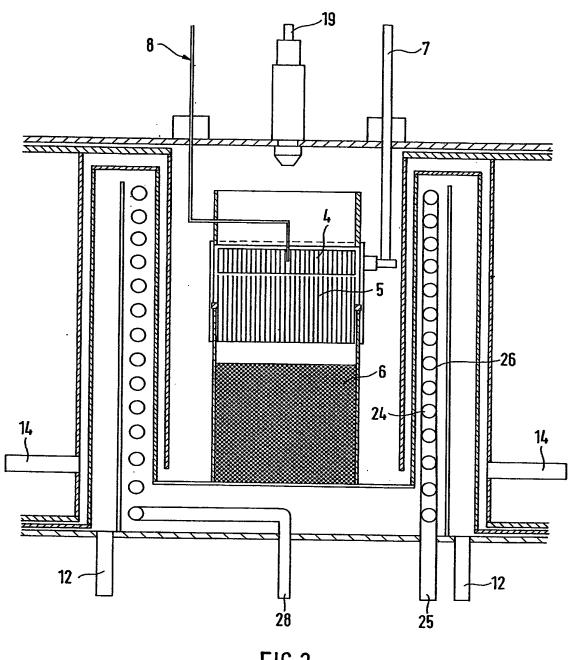


FIG.3

